

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-012359

(43)Date of publication of application : 16.01.1996

(51)Int.Cl. C03B 20/00
C03B 19/09
C30B 15/10
C30B 29/06

(21)Application number : 06-170366

(71)Applicant : SHINETSU QUARTZ PROD CO LTD

(22)Date of filing : 30.06.1994

(72)Inventor : IWATANI FUJIO

KATAOKA MASAATSU

WATANABE HIROYUKI

SATO TATSUHIRO

(54) QUARTZ GLASS CRUCIBLE AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PURPOSE: To produce a quartz glass crucible having a transparent layer free from granular structure in the inside by supplying a high purity silica powder having a specific particle diameter to a rotating mold and after forming a silica powder packed layer, arc heating from the inside.

CONSTITUTION: The high purity crystalline silica powder having 30-150 μ m particle diameter and 40-100 μ m average particle diameter or the high purity amorphous silica powder having 50-200 μ m particle diameter and 100-150, average particle diameter is prepared. The silica powder is supplied to the rotating mold to form the silica powder packed layer, which is arc heated from the inside to be fused. As a result, the quartz glass crucible having the transparent layer free from the granular structure in the inside is obtained. By the use of the obtained quartz glass crucible, the inside surface keeps smoothness without roughening even when the pulling-up of a single crystal is executed under the reducing pressure and the continuous filling and pulling-up or the like are executed at high crystallization yield.

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A silica glass crucible, wherein there is no granular structure in a clear glass layer in a silica glass crucible which has the hyaline layer which formed silica powder as a raw material with arc rotation scorification inside.

[Claim 2]In a manufacturing method of silica glass Ruth who has a hyaline layer which supplies silica powder of a high grade in a rotating mold, forms a silica powder packed bed, and carries out arc heating of it from an inside inside, A manufacturing method of a silica glass crucible using silica powder as with particle diameter of 30–150 micrometers, and a mean particle diameter of 40–100 micrometers crystalline substance silica powder.

[Claim 3]In a manufacturing method of a silica glass crucible which has a hyaline layer which supplies silica powder of a high grade in a rotating mold, forms a silica powder packed bed, and carries out arc heating of it from an inside inside, A manufacturing method of a silica glass crucible using silica powder as with particle diameter of 50–200 micrometers, and a mean particle diameter of 100–150 micrometers amorphous silica powder.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application]This invention relates to a large caliber silica glass crucible suitable for pulling up a silica glass crucible for decompression raising of a silicon single crystal and a manufacturing method for the same, and a still more detailed large-sized silicon single crystal by the multi-raising method, the continuation restoration raising method, etc., and a manufacturing method for the same.

[0002]

[Description of the Prior Art]In recent years, with large-caliber-izing of a silicon wafer, the caliber of the silica glass crucible for raising of a single crystal also becomes large with 22–24 inches (558.8–609.6 mm) from 18 inches (457.2 mm), and is becoming in use [it] nowadays. The internal surface of said silica glass crucible for crystal pulling touches silicon melting liquid, and has a function which reacts to silicon, dissolves or carries out heat transfer of the heat from an external carbon heater to silicon melt. With large-caliber-izing of this silica glass crucible, the wall of the crucible separated from the single crystal, that heat load became large, the reaction of a crucible wall surface and silicon melt became intense, the crucible internal surface was ruined and prolonged use of the crucible became difficult. In order that the difficulty of prolonged use of this silica glass crucible might make cost of a single crystal high, the appearance of the

crucible usable for a long time, especially the silica glass crucible of the large caliber in which prolonged use is possible under decompression was demanded strongly.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]The result to which this invention persons repeated research wholeheartedly about prolonged use of the silica glass crucible of a large caliber in view of such the actual condition, The hyaline layer which does not have air bubbles inside a crucible is provided, it finds out that it can be used also by raising of the large-sized silicon single crystal under decompression by abolishing the granular structure of the hyaline layer for a long time, and this invention is completed. namely[0004]An object of this invention is to provide the large caliber silica glass crucible which does not have granular structure in a hyaline layer.

[0005]An object of this invention is to provide the large caliber silica glass crucible which can raise the large-sized single crystal under decompression of the multi-raising method, the continuation restoration raising method, etc. for a long time.

[0006]An object of this invention is to provide the manufacturing method of the large caliber silica glass crucible which does not have granular structure in a hyaline layer.

[0007]

[Means for Solving the Problem]In a silica glass crucible which has the hyaline layer which formed silica as a raw material with arc rotation scorification inside, this invention which attains the above-mentioned purpose relates to a silica glass crucible, wherein there is no granular structure in a clear glass layer, and a manufacturing method for the same.

[0008]The above-mentioned hyaline layer means a transparent quartz glass layer without air bubbles obtained with an arc melting rotation method. A sample of a thickness of 1 mm and 15 mm squares is started from a hyaline layer as there is no granular structure in this hyaline layer, a point projection light source after grinding the both sides — from a high-pressure mercury lamp to a screen being set to 1–1.5m, and preferably, A hyaline layer where an irregular shadow is not made on a screen projected when said sample is set and floodlighted in a 40–50-cm position from a light source is said {refer to the “industrial material” Vol41 (1974) 66th page}. (henceforth shading)

[0009]If there is no granular structure in a hyaline layer, even if it is large-caliber-ized and contact time with silicon melt becomes long, a reaction and an erosion of an internal surface of a silica glass crucible will be performed uniformly, and a smooth side will be maintained, And roughness by maldistribution of an impurity or the depth of crystallization does not happen inside a circle of a round form spot of cristobalite which occurs and grows by contact with silicon melt, either. Even if it pulls up a single crystal for example, under decompression using this silica glass crucible, smoothing of a wall of a crucible is maintained and a single crystal can be pulled up on multiple times or a continuation target. As for transparent layer thickness without said granular structure, it is important that it is the thickness which it is exposed of a lower layer bubble containing layer of a hyaline layer, and does not damage an internal surface by several raising of a single crystal.

[0010]The crystallinity of silica powder which is a raw material, particle diameter, and heating conditions at the time of manufacture of a crucible are important for forming a hyaline layer without the above-mentioned granular structure. When silica powder is crystalline substance silica powder, silica powder to be used is

detailed, and its narrow thing of particle size distribution is good, and it can form a hyaline layer without granular structure by fusing it with twice [1.2 to] as many electric power as the conventional electric power. Specifically, with particle diameter of 30–150 micrometers and a mean particle diameter of 40–100 micrometers crystalline substance silica powder is used suitably. Particle diameter and electric power cannot abolish granular structure except said range.

[0011]When a raw material is amorphous silica powder, although electric power may be comparable as the former, it is on the other hand, good to use amorphous silica powder to which the range of 50–200 micrometers particle diameter and 100–150-micrometer mean particle diameter and particle diameter are equal. Particle diameter cannot abolish granular structure with the outside of said range, or large amorphous silica powder of particle size distribution.

[0012]Three phase power of 40V and 500A is required for a caliber to fuse a 6 inches (about 15 cm) crucible as indicated as the above-mentioned conventional electric power, for example to JP,53-125290,A, but. Since a caliber of a crucible increases 4 times from 3 times and weight of a crucible which should be carried out melting is proportional to the cube about, used power also needs to be proportional to a part for said weight increase nowadays, but. Incubation is devised, or melting time is extended and about 5 times [of electric power given / said / in JP,53-12590,A] electric power is used actually. That is, from 50V, it is about [60V] voltage and about [2,000A] electric power is the conventional electric power. Therefore, conventionally, although it is good also as 1.2 to twice to make both sides of voltage and current increase current as for 1.2 to twice, to not change voltage, for example, it is necessary to make current twice [1.2 to] as many electric power as electric power at 3,000–5,000A.

[0013]Although a method of carrying out heat melting by an arc from an inner surface is adopted supplying as a formation method of a hyaline layer formed inside a silica glass crucible in a mold turning around a silica raw material of a high grade of the range of the above-mentioned particle diameter, and rotating a mold, It is filled up with quartz powder along inner skin of a gas permeation genotype (i)-rotated preferably, A formation method which carries out heat melting using an arc from the inner skin side carrying out suction pressure reduction of this silica powder packed bed from a periphery (henceforth decompression scorification), And silica powder is supplied in a gas type which rotates so that it may see to (ii) JP,1-148718,A, While forming a silica powder packed bed and carrying out heat melting of it using an arc, silica powder can be further supplied in a crucible and melting and a formation method to disperse can be mentioned for it on a crucible internal surface.

[0014]

[Example]Although this invention is concretely explained based on an example below, this invention is not limited to this.

[0015]In accordance with the manufacturing method of a silica glass crucible given in example 1 JP,1-148718,A, While supplying in the mold turning around the natural crystal powder in which the particle diameter of the range of 100–500 micrometers carried out purification processing and carrying out arc discharge using the electric power of 60V and 3,000A, The natural crystal powder of the range of 40–80 micrometers particle diameter and 70-micrometer mean particle diameter furthermore was supplied little by little, melting and scattering of were done, and six 22-inch silica glass crucibles with a hyaline layer were created. After starting the 1-mm-thick sample from the hyaline layer of the inner layer pars basilaris ossis

occipitalis and the body part and carrying out mirror polishing of it from one of them, it inspected by shading. An irregular shadow was not looked at by the sample. When the silicon single crystal was pulled up under decompression using said each created silica glass crucible, three multi-raising or more was completed. When the internal surface of the crucible after said raising was observed, there was little roughness and it was in the state which maintains a smooth field and can carry out a reuse.

[0016] Four silica glass crucibles were created with decompression scorification given in JP,59-34659,B using the amorphous quartz powder object of the range of example 2 particle diameter of 100-150 micrometers, and the pitch diameter of 120 micrometers. After starting the 1-mm-thick sample from the hyaline layer of the inner layer pars basilaris ossis occipitalis and the body part and carrying out mirror polishing of it from one of them, it investigated by shading. An irregular shadow was not seen by the sample but it was transparent. When the silicon single crystal was pulled up by the three remaining pieces, each crucible has attained four multi-raising or more. When the internal surface of the crucible was observed after said raising, there was little roughness and it was maintaining the smooth field.

[0017] Using natural crystal powder with comparative example 1 particle diameter of 180-350 micrometers, the voltage of 60V and 3,000A was applied, five silica glass crucibles were created like Example 1, the sample was started like Example 1 from one of them, and it inspected by shading. Typical granular structure was seen by the sample at the pars basilaris ossis occipitalis and the body part. When the silicon single crystal was pulled up by the four remaining pieces, it could be used only once, but the crucible internal surface after use had become granulative, and the reuse was impossible.

[0018]

[Effect of the Invention] Even if the silica glass crucible of this invention performs raising of a single crystal under decompression, without an internal surface being ruined, smoothing is maintained and it can perform multi-raising and continuation restoration raising with a sufficient crystallization rate. And said silica glass crucible can be manufactured by specifying the particle diameter of electric power and silica powder using the conventional arc rotation scorification, and is an advantageous manufacturing method also in cost.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-12359

(43) 公開日 平成8年(1996)1月16日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 3 B 20/00				
19/09				
C 3 0 B 15/10				
29/06	5 0 2 B	9261-4G		

審査請求 未請求 請求項の数 3 F D (全 3 頁)

(21) 出願番号 特願平6-170366

(22) 出願日 平成6年(1994)6月30日

(71) 出願人 000190138

信越石英株式会社

東京都新宿区西新宿1丁目22番2号

(72) 発明者 岩谷 富士雄

福島県郡山市田村町金屋字川久保88 信越

石英株式会社石英技術研究所内

(72) 発明者 片岡 正篤

福井県武生市北府2丁目13番地60号 信越

石英株式会社武生工場内

(72) 発明者 渡辺 博行

福井県武生市北府2丁目13番地60号 信越

石英株式会社武生工場内

(74) 代理人 弁理士 服部 平八

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 石英ガラスルツボ及びその製造方法

(57) 【要約】

【構成】 アーク回転溶融法により形成された内表面に透明層を有する石英ガラスルツボにおいて、透明ガラス層に粒状構造がないことを特徴とする石英ガラスルツボおよびその製造方法。

【効果】 本発明の石英ガラスルツボは、単結晶の引上げを減圧下で行っても、内表面が荒れることなく平滑さが維持され、結晶化率よくマルチ引上げや連続充填引上げを行うことができる。しかも前記石英ガラスルツボは、従来のアーク回転溶融法を用い、単にシリカ粉の粒径を規定することにより製造でき、コスト的にも有利な製造方法である。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 アーク回転溶融法によりシリカ粉を原料として形成した透明層を内側に有する石英ガラスルツボにおいて、透明ガラス層に粒状構造がないことを特徴とする石英ガラスルツボ。

【請求項 2】 回転する型内に高純度のシリカ粉を供給しシリカ粉充填層を形成し、それを内部からアーク加熱する透明層を内側に有する石英ガラスルツボの製造方法において、シリカ粉を粒径 30～150 μm 、平均粒径 40～100 μm の結晶質シリカ粉とすることを特徴とする石英ガラスルツボの製造方法。

【請求項 3】 回転する型内に高純度のシリカ粉を供給しシリカ粉充填層を形成し、それを内部からアーク加熱する透明層を内側に有する石英ガラスルツボの製造方法において、シリカ粉を粒径 50～200 μm 、平均粒径 100～150 μm の非晶質シリカ粉とすることを特徴とする石英ガラスルツボの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、シリコン単結晶の減圧引上げ用石英ガラスルツボおよびその製造方法、さらに詳しくは大型のシリコン単結晶をマルチ引上げ法や連続充填引上げ法等で引き上げるのに適した大口径石英ガラスルツボおよびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、シリコンウエーハの大口径化に伴い、単結晶の引上用石英ガラスルツボの口径も 18 インチ (457.2 mm) から 22～24 インチ (558.8～609.6 mm) と大きくなりそれが今日では主流となりつつある。前記単結晶引上用石英ガラスルツボの内表面は、シリコン融液に接し、シリコンと反応し溶解したり、あるいは外部のカーボンヒーターからの熱をシリコン融液に伝熱する機能を有している。この石英ガラスルツボの大口径化に伴い、ルツボの内壁が単結晶から離れその熱負荷が大きくなり、ルツボ壁面とシリコン融液との反応が激しくなりルツボ内表面が荒れ、ルツボの長時間使用が困難となった。かかる石英ガラスルツボの長時間使用の困難さは単結晶のコストを高いものにするため、長時間使用可能なルツボ、特に減圧下においても長時間の使用が可能な大口径の石英ガラスルツボの出現が強く要望されていた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 こうした現状に鑑み、本発明者らは、大口径の石英ガラスルツボの長時間使用について鋭意研究を重ねた結果、ルツボの内側に気泡のない透明層を設け、その透明層の粒状構造をなくすることで減圧下での大型シリコン単結晶の引上げでも長時間使用できることを見出し、本発明を完成したものである。すなわち、

【0004】 本発明は、透明層に粒状構造のない大口径

石英ガラスルツボを提供することを目的とする。

【0005】 また、本発明は、マルチ引上げ法や連続充填引上げ法等の減圧下での大型の単結晶の引上げを長時間実施できる大口径石英ガラスルツボを提供することを目的とする。

【0006】 さらに、本発明は、透明層に粒状構造のない大口径石英ガラスルツボの製造方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成する本発明は、アーク回転溶融法によりシリカを原料として形成した透明層を内側に有する石英ガラスルツボにおいて、透明ガラス層に粒状構造がないことを特徴とする石英ガラスルツボおよびその製造方法に係る。

【0008】 上記透明層とは、アーク溶融回転法で得られた気泡のない透明な石英ガラス層をいう。この透明層に粒状構造がないとは、透明層から 1 mm の厚さ、15 mm 角のサンプルを切り出し、その両面を研磨したのち、ポイントプロジェクション光源、好ましくは高圧水銀ランプからスクリーンまでを 1～1.5 m とし、光源から 40～50 cm の位置に前記サンプルをセットし、投光したとき映し出されるスクリーン上に不規則の影ができない透明層をいう（以下陰影法という）（「工業材料」Vol. 41 (1974) 第 66 頁参照）。

【0009】 透明層に粒状構造がないと、大口径化されシリコン融液との接触時間が長くなっても石英ガラスルツボの内表面の反応・溶損が均一に行われ平滑面が維持され、かつシリコン融液との接触で発生・成長するクリストバライトの円状斑点の円の内部に不純物の偏在や結晶化の深さによる荒れも起ることがない。かかる石英ガラスルツボを用いて単結晶を例えば減圧下で引上げても、ルツボの内壁の平滑さが維持され、単結晶を複数回あるいは連続的に引き上げることができる。前記粒状構造のない透明層の厚さは、単結晶の数回の引上げによっても透明層の下層の気泡含有層が露呈し、内表面を荒さない厚さであることが肝要である。

【0010】 上記粒状構造がない透明層を形成するには原料であるシリカ粉の結晶性、粒径、およびルツボの製造時の加熱条件が重要である。シリカ粉が結晶質シリカ粉の場合には、使用するシリカ粉は微細で粒度分布の狭いものがよく、それを従来の電力の 1.2～2 倍の電力で溶融することにより粒状構造のない透明層を形成することができる。具体的には粒径 30～150 μm 、平均粒径 40～100 μm の結晶質シリカ粉が好適に使用される。粒径および電力が前記範囲以外では粒状構造をなくすることができない。

【0011】 一方、原料が非晶質シリカ粉の場合には、電力は従来と同程度でよいが粒径が 50～200 μm 、平均粒径が 100～150 μm の範囲と粒径の揃っている非晶質シリカ粉を使用するのがよい。粒径が前記範囲

外または粒度分布の広い非晶質シリカ粉では粒状構造をなくすことができない。

【0012】上記従来の電力とは、例えば特開昭 53-125290 号公報に記載されているように、口径が 6 インチ（約 15 cm）のルツボを溶融するには 40 V、500 A の三相電力が必要であるが、今日ではルツボの口径が 3 倍から 4 倍になり、溶融すべきルツボの重量はその 3 乗に凡そ比例するため、使用電力も前記重量の増加分に比例する必要があるが、保温を工夫したり、あるいは溶融時間を延長して、実際には前記特開昭 53-12590 号公報記載の電力の約 5 倍程度の電力が用いられている。すなわち、50 V から 60 V 程度の電圧で、2,000 A 程度の電力が従来の電力である。したがって、従来電力の 1.2～2 倍の電力とは、電流を 1.2～2 倍にしても、また電圧と電流の双方を増加させて 1.2～2 倍としてもよいが、例えば電圧を変えない場合には、電流を 3,000～5,000 A にする必要がある。

【0013】石英ガラスルツボの内側に形成する透明層の形成方法としては、上記粒径の範囲の高純度のシリカ原料を回転する型内に供給し、型を回転しながら内面からアークで加熱溶融する方法が採用されるが、好ましくは例えば、(i) 回転するガス透過性型の内周面に沿って石英粉を充填し、該シリカ粉充填層を外周から吸引減圧しつつその内周面側からアークを用いて加熱溶融する形成方法（以下減圧溶融法という）、および (ii) 特開平 1-148718 号公報に見るように回転するガス型内にシリカ粉を供給し、シリカ粉充填層を形成し、それをアークを用いて加熱溶融すると同時に、さらにシリカ粉をルツボ内に供給し、それをルツボ内表面上に溶融、飛散させる形成方法を挙げることができる。

【0014】

【実施例】以下に実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0015】実施例 1

特開平 1-148718 号公報記載の石英ガラスルツボの製造方法に従い、100～500 μm の範囲の粒径の純化处理した天然水晶粉を回転する型内に供給し、60 V、3,000 A の電力を用いてアーク放電するととも *

* に、さらに粒径が 40～80 μm 、平均粒径が 70 μm の範囲の天然水晶粉を少しずつ供給し、溶融・飛散させて 22 インチの透明層付石英ガラスルツボを 6 個作成した。その中の 1 個から、内層底部、直胴部の透明層から厚さ 1 mm のサンプルを切り出し、それを鏡面研磨したのち、陰影法で検査した。サンプルには不規則な影が見られなかった。前記作成した各石英ガラスルツボを用いてシリコン単結晶を減圧下で引き上げたところ 3 回以上のマルチ引上げができた。前記引上げ後のルツボの内表面を観察したところ、荒れが少なく、滑らかな面を維持し再使用できる状態であった。

【0016】実施例 2

粒径 100～150 μm 、平均径 120 μm の範囲の非晶質の石英粉体を用いて、特公昭 59-34659 号公報記載の減圧溶融法で石英ガラスルツボを 4 個作成した。その中の 1 個から、内層底部、直胴部の透明層から厚さ 1 mm のサンプルを切り出し、それを鏡面研磨したのち、陰影法で調べた。サンプルには不規則な影がみられず、透明であった。残りの 3 個でシリコン単結晶を引上げたところ各ルツボとも 4 回以上のマルチ引上げが達成できた。前記引上げ後にルツボの内表面を観察したところ、荒れが少なく、滑らかな面を維持していた。

【0017】比較例 1

粒径 180～350 μm の天然水晶粉を用い、60 V、3,000 A の電圧を掛けて実施例 1 と同様にして石英ガラスルツボを 5 個作成し、その中の 1 個から実施例 1 と同様にサンプルを切り出し、陰影法で検査した。サンプルには典型的な粒状構造が底部、直胴部にみられた。残りの 4 個でシリコン単結晶を引き上げたところ、1 回しか使用できず、使用後のルツボ内表面はザラザラになっており、再使用が不可能であった。

【0018】

【発明の効果】本発明の石英ガラスルツボは、単結晶の引上げを減圧下で行っても、内表面が荒れることなく平滑さが維持され、結晶化率よくマルチ引上げや連続充填引上げを行うことができる。しかも前記石英ガラスルツボは、従来のアーク回転溶融法を用い、電力とシリカ粉の粒径を規定することにより製造でき、コスト的にも有利な製造方法である。

フロントページの続き

(72)発明者 佐藤 龍弘

福井県武生市北府 2 丁目 13 番地 60 号 信越
石英株式会社武生工場内